

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-8414

⑮ Int.Cl.<sup>4</sup>

C 08 G 59/40  
73/12

識別記号

NKG  
NTH

庁内整理番号

A-6561-4J  
A-2102-4J

⑭ 公開 昭和63年(1988)1月14日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全10頁)

⑬ 発明の名称 熱硬化性粉体組成物

⑰ 特 願 昭61-151997

⑱ 出 願 昭61(1986)6月28日

⑲ 発 明 者 北 川 勝 治 埼玉県春日部市牛島1358番地4

⑲ 発 明 者 芥 川 一 郎 千葉県流山市江戸川台東3目198番地

⑲ 発 明 者 松 尾 敏 夫 埼玉県越谷市南越谷1丁目4番52号 高山ハイツ103号

⑲ 出 願 人 ソ マ ー ル 株 式 会 社 東京都中央区銀座4丁目11番2号

#### 明 細 書

1. 発明の名称 熱硬化性粉体組成物

2. 特許請求の範囲

(1) (A) 分子中にイミド基を少なくとも1個有するマレイミド化合物及び又はその初期縮合物10～90重量部、(B) エポキシ樹脂90～10重量部、(C) ジシアンジアミド類-イミダゾール類混合系、ジシアンジアミド類-有機過酸化物類混合系、酸ヒドラジド類-イミダゾール類混合系、酸ヒドラジド類-有機過酸化物類混合系、芳香族ジアミン類-イミダゾール類混合系、芳香族ジアミン類-ルイス酸類混合系の少なくとも1種からなる硬化剤の有効量、並びに(D) 充填材30～250重量部を含む熱硬化性粉体組成物。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、熱硬化性粉体組成物、特に耐熱性にすぐれた硬化物を与える組成物に関する。

該組成物は、各種成形材料、積層材料製造用バインダー、素子封止材料等に好適とされ、なかでも粉体塗装法を採用しての各種コイル類への含浸、固着に有用とされる。

(従来の技術)

従来、上記のような用途に用いられる耐熱性を有する熱硬化性粉体組成物としては、種々の組成からなるものが知られている。

具体的には、シリコン樹脂、シリコン変性エポキシ樹脂及び硬化剤からなる組成物、ポリイミド樹脂、ポリイミド変性エポキシ樹脂及び硬化剤からなる組成物、ビスマレイミド・トリアジン樹脂、エポキシ樹脂及び硬化剤からなる組成物、モノマレイミド化合物、ポリマレイミド化合物及びエポキシ樹脂からなる組成物(特開昭57-74327号)、特定の化学構造を有するモノマレイミド化合物とエポキシ樹脂とからなる組成物(特開昭57-74328号)等が公知とされている。

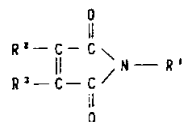
しかしながら、上記したような従来の組成物に

は下記の欠点がある。すなわち、耐熱性と機械的物性とのバランスのとれた硬化物を得ることが困難であり用途に制限がある。また、硬化物を得るのに高温で、長時間が必要とされ、例えば前記組成物をコイルの含浸、固着用として用いる場合には硬化過程において、極端な粘度低下がみられ、組成物の漏れやタレが生じ、得られる硬化物に発泡やボイドがみられるようになる。さらに、得られる硬化物は金属類との密着性に劣り、変性樹脂を使用する場合は、変性するための合成に煩雑な工程が必要となる。

また、モノー又はポリマレイミド化合物とエポキシ樹脂からなる系に硬化剤として、例えば3、3'、4、4'-ベンゾフエノンテトラカルボン酸無水物やジシクロペンタジエンと無水マレイン酸との反応生成物などのような酸無水物を配合してなる組成物を硬化させて得られる塗膜は、発泡が生じ、しかも光沢がなく、目的とする性能を有する塗膜が得られない。

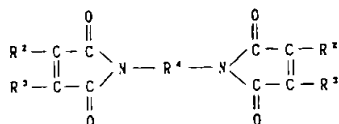
(発明が解決しようとする問題点)

(i) 式



(式中、 $\text{R}^1$  は1価の原子又は基、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$  は同一若しくは異なりて水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アリール基である。)で示されるモノマレイミド化合物

(ii) 式



(式中、 $\text{R}^4$  はマレイミド基を有しない2価の有機基、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$  は前記と同じものである。)で示されるビスマレイミド化合物

## 特開昭63-8414 (2)

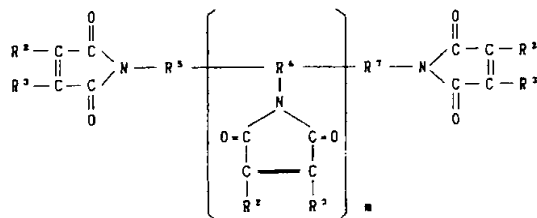
本発明は、上述の如き従来の欠点を除去した新規かつ改良された組成物を提供しようとするものである。

(問題点を解決するための手段)

本発明は、(A) 分子中にイミド基を少なくとも1個有するマレイミド化合物及び又はその初期縮合物10～90重量部、(B) エポキシ樹脂90～10重量部、(C) ジシアンジアミド類-イミダゾール類混合系、ジシアンジアミド類-有機過酸化物類混合系、酸ヒドラジド類-イミダゾール類混合系、酸ヒドラジド類-有機過酸化物類混合系、芳香族ジアミン類-イミダゾール類混合系、芳香族ジアミン類-ルイス酸類混合系の少なくとも1種からなる硬化剤の有効量、並びに(D) 充てん材30～250重量部を含む硬化性粉体組成物である。

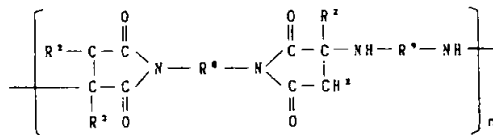
本発明において、分子中にイミド基を少なくとも1個、好ましくは2個有するマレイミド化合物としては、下記に示すような化合物があげることができる。

(iii) 式



(式中、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$  は同種若しくは異種の2価の有機基、 $\text{R}^7$  は3価の有機基、 $\text{R}^8$ 、 $\text{R}^9$  は前記3同じものである。 $m$ は正の整数である。)で示される多価マレイミド化合物

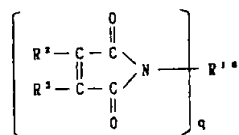
(iv) 式



(式中、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$  は同種若しくは異種の2価の

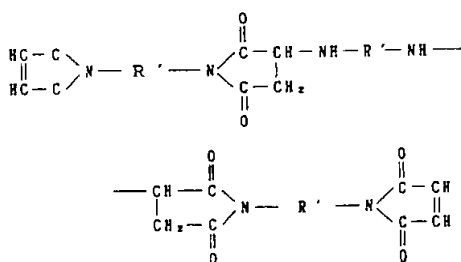
有機基、 $R^2$ 、 $R^3$  は前記と同じものである。 $n$  は正の整数である。) で示されるポリマレイミド化合物

(V) 式



(式中、 $R^{1*}$  は3価以上の多価有機基、 $q$  は3以上の正の整数、 $R^2$ 、 $R^3$  は前記と同じものである。) で示されるポリマレイミド化合物

前記式中の $R^1$  で示される1価の原子又は基としては、フェニル基、メトキシフェニル基などを例示することができ、 $R^2$ 、 $R^3$  で示されるハロゲン原子、アルキル基、アリール基としては、塩素原子、臭素原子、よう素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、フェニル基などをあげることができる。 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^7$  で示される2価の基



(式中 $R'$  は2価の有機基である。) で示されるポリマレイミドは、ジアミノジフェニルメタン1モルとビスマレイミド2モルとを反応させることにより得ることができる。

このマレイミド化合物、その初期縮合物は使用に当っては1種類に限定されず2種若しくはそれ以上を併用してもよい。

つぎにエポキシ樹脂としては、従来から知られている種々のものを使用することができる。

これらのエポキシ樹脂を具体的に例示すると、ビスフェノールA型、ビスフェノールB型、ビス

としては、ビスフェニル、ジフェニルメタン、 $\alpha$ 、 $\alpha'$ -ジメチルジフェニルメタン、ジフェニルエーテル、ジフェニルチオエーテル、ジフェニルケトン、ジフェニルアミン、ジフェニルスルホキシド、ジフェニルスルホン、トリフェニルホスフェートなどから誘導される基やアルキレン基、オキシアルキレン基、アルケニレン基、フェニレン基、シクロヘキシレン基などやこれらの基の水素原子が部分的に置換した基などが、また $R^4$  としては、上記と同様の化合物から誘導される3価の基があげられる。 $R^6$ 、 $R^8$  としては、前記 $R^4$  で例示した基から選択される基をあげることができる。

さらに、 $R^{1*}$  としては、芳香族炭化水素化合物から誘導される残基、任意の原子や基を介して結合した有機基をあげることができる。

上記したような各種マレイミド化合物は、いずれも公知の方法により合成することができる。例えば式

フェノールF型、フェノールノボラック型、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、線状脂肪族エポキシ樹脂、複素環型エポキシ樹脂、ハロゲン化特に臭素化エポキシ樹脂等があげられ、これらからなる群より選ばれる1種若しくは2種以上のものが用いられる。

これらのうちでも本発明において好ましいエポキシ樹脂は、常態において固体状を呈し、エポキシ当量が450~800、融点が65~90℃の範囲にあるビスフェノールA型エポキシ樹脂である。

具体的には、エピコート1001、同1002、同1003 (いずれも油化シエルエポキシ社製エポキシ樹脂商品名) 等をあげることができる。

上記したマレイミド化合物及び/又はその初期縮合物とエポキシ樹脂との使用割合は、前者10~90重量部に対して後者90~10重量部、好

## 特開昭 63-8414 (4)

ましくは前者 50 ~ 80 重量部に対して後者 50 ~ 20 重量部である。

この量限定の理由は、下記のとおりである。マレイミド化合物類が余りに少なすぎると耐熱性にすぐれた硬化物を得ることが困難となる等の不利がみられ、逆に余りに多すぎると金属類への接着性ないし固着性に劣る、無機質充填剤を混練する際に高粘度となり十分な均一分散が困難となる、また得られる硬化物に割れが生じ切削加工作業に支障をきたす、さらに被塗物へのぬれ性に劣り平滑な塗膜が得られない等の問題が発生する。

本発明で最重要点である混合系硬化剤については、下記のような組合せであることが必須とされる。

- (i) ジシアンジアミド類-イミダゾール類混合系
- (ii) ジシアンジアミド類-有機過酸化物類混合系
- (iii) 酸ヒドラジド類-イミダゾール類混合系
- (iv) 酸ヒドラジド類-有機過酸化物類混合系

チル-2-ウンデシルイミダゾリウムトリメリテート、2-メチルイミダゾリウムイソシアヌレート、2, 4-ジアミノ-6-(2-メチルイミダゾリル-II) エチル-S-トリアジン、2, 4-ジアミノ-6-(2-ウンデシルイミダゾリル-II) -エチル-S-トリアジン、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール等があげられる。

これらのうちでも反応性、安定性からは1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾリウムトリメリテート、2, 4-ジアミノ-6-(2-ウンデシルイミダゾリル-II) -エチル-S-トリアジンが特に好ましい。

芳香族ジアミン類としては、2-又は3-フェニレンジアミン、2-又は3-キシレンジアミン、ジアミノジフェニルスルホン、1, 3-ジアミノシクロヘキサン、ヘキサヒドロキシレンジアミン、4, 4'-ビスアミノフェニルメタン、ビス(4-アミノ-3-メチルフェニル)メタン、ビス(4-アミノ-3, 5-ジメチルフェニル)メタ

- (v) 芳香族ジアミン類-イミダゾール類混合系
- (vi) 芳香族ジアミン類-3級アミン類混合系
- (vii) 芳香族ジアミン類-ルイス酸類混合系

本発明において硬化剤は、上記のような特定組合せの混合系で使用する必要があるとあり、これ以外の混合系や、単独使用では、本発明の目的を達成することができない。

ここにジシアンジアミド類としては、例えばジシアンジアミドのほか、ジシアンジアミドと芳香族アミン化合物から合成されるグアニジン化合物も包含される。

また、イミダゾール類としては、2-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-4-エチルイミダゾール、1-シアノエチル-ウンデシルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエ

ン、4, 4'-ビスアミノフェニルシクロヘキサン、4, 4'-ビスアミノフェニルエーテル、2, 2-ビス(4-アミノ-3-メチルフェニル)メタン、ジアミノジフェニルメタンなどがあげられ、これらのうちでも安定性、反応性の点からはビス(4-アミノ-3-メチルフェニル)メタン、ビス(4-アミノ-3, 5-ジメチルフェニル)メタンが好ましい。

有機過酸化物類としては、ジクミルパーオキシド、ベンゾイルパーオキシド、ラウリルパーオキシド、アセチルパーオキシド、3-クロロベンゾイルパーオキシド、ジ-tert-ブチルジパーフタレートなどが例示される。なかでもジクミルパーオキシド安定性、反応性、取扱い性などから好ましいものとされる。

酸ヒドラジド類としては、コハク酸ヒドラジド、アジピン酸ヒドラジド、イソフタル酸ヒドラジド、オキシ安息香酸ヒドラジド、サリチル酸ヒドラジド、フェニルアミノプロピオン酸ヒドラジド等があげられ、安定性、反応性、硬化物の耐熱性を考

慮した場合にはイソフタル酸ジヒドラジドが好ましい。

3級アミン類としては、ジメチルシクロヘキシルアミン、ジメチルヘキシルアミン、ベンジルジメチルアミン、ジメチルアニリン、ジメチルトルイジン、ジメチル-4-アニシジン、4-ハロゲン-N, N-ジメチルアニリン、2-N-エチルアニリノエタノール、トリ-n-ブチルアミン、ピリジン、キノリン、N-メチルモルホリン、トリエタノールアミン、トリエチレンジアミン、N, N, N', N'-テトラメチルプタンジアミン、ビペリジン、ジメチルアミノメチルフェノール、N-メチルビペリジンなどが例示される。

さらに、ルイス酸類としては、 $\text{BF}_3$ 、 $\text{PF}_5$ 、 $\text{AsF}_5$ 、 $\text{SbF}_5$ などのアミン錯体、 $\text{BF}_3$ -アミン塩、具体的には $\text{BF}_3$ -モノエチルアミン錯体、 $\text{BF}_3$ -ヘキシルアミン錯体、 $\text{BF}_3$ -ベンジルアミン錯体、 $\text{BF}_3$ -ビペリジンアミン錯体、 $\text{BF}_3$ -トリエチルアミン錯体、 $\text{BF}_3$ -アニリン錯体、 $\text{PF}_5$ -エチルアミン錯体、 $\text{PF}_5$ -イソプロピルアミン錯体、

この混合系硬化剤の使用量は、上記(A)及び(B)成分の合計量に対して有効量、具体的には0.01～20重量%とされる。この使用量が少なすぎると硬化反応が十分に進行せず、高温初期の加熱減量も大きくなり、所望の耐熱性が得られず、しかも割れ、クラックが生ずるようになり、逆に多すぎると硬化物を高温雰囲気中にさらした場合、酸化、熱分解が促進されるようになる。

本発明で使用される充てん剤としては、シリカ、アルミナ、炭酸カルシウム、ウォラストナイト、マイカなどの無機質系、フェノール樹脂の半硬化ないし硬化物やポリイミド、ポリフェニレンスルホンあるいはポリエーテルスルホンの硬化物などの有機質系のものがあげられる。これらは任意の粒径の微粉末として使用に供される。

この充てん剤は、本発明では重要な成分であり、このものを欠如した組成物では、本発明の目的を達成することができない。

この充てん剤は、上記(A)成分と(B)成分との合計量100重量部に対して30～250重量部

## 特開昭63-8414 (5)

$\text{PF}_5$ -ブチルアミン錯体、 $\text{AsF}_5$ -ラウリルアミン錯体等が例示され、なかでも $\text{BF}_3$ -モノエチルアミン錯体は特に好ましい。

上記した混合系硬化剤における各成分の使用比については、硬化剤の種類により若干相違し、具体的にはジシアンジアミド類とイミダゾール類又は有機過酸化物類系にあっては、4:1～1:1、酸ヒドラジド類とイミダゾール類又は有機過酸化物類にあっては15:1～3:1、芳香族ジアミンとイミダゾール類、3級アミン類またはルイス酸類にあっては40:1～4:1の範囲（いずれも重量比）とすることがよい。硬化剤における使用比が、上記範囲を逸脱した場合には耐熱性と機械強さのバランスのとれた硬化物を得ることができない。

本発明において、最も好ましい混合系硬化剤ならびに使用比は、ジシアンジアミド類とイミダゾール類とからなり、使用比が3～2:1の混合系硬化剤、芳香族ジアミン類とイミダゾール類とからなり、使用比が13:1の混合系硬化剤である。

の範囲とされる。該使用量が30重量部未満では、硬化物の熱収縮、硬化収縮を十分に防止することができず、割れ、クラックの発生が大で、また塗装、硬化過程において、粉体材料が流れ出してタレが発生し均一な硬化塗膜を得ることが困難となる。

また、250重量部を超えると被着体に対してのぬれ性が劣るようになり、平滑な塗膜が得られず、さらに接着性も悪くなる。

本発明の組成物は、本質的には上記した(A)～(D)成分からなるが、必要に応じて任意の成分を本発明の目的を阻害しない範囲で含むことは何ら差支えない。任意の成分としては、例えば顔料、硬化促進剤、耐熱性付与剤、たれ止め剤、分散助剤、塗膜改質剤、難燃性付与剤等をあげることができる。

本発明の組成物は、通常の粉体組成物とほぼ同様にして調製することができる。具体的には、上記(A)～(D)成分を均一に混練後（機械的に行ってもよい）、必要に応じて所望の粒径に粉砕する

ことにより調製することができる。

(発明の効果)

本発明の組成物から得られる硬化物は、耐熱性と機械的強さのバランスにすぐれている。硬化の際には従来のような高温、長時間の加熱を必要とせず比較的低温、短時間で硬化させることができることから粘度に悪影響を及ぼさず、結果として良好な硬化物を得ることができる。硬化物は、金属、セラミック等種々の材料の塗装面に対する密着性ないし固着性においてすぐれている。本発明の組成物を用いると、構成成分として、その合成が複雑な変性化合物を使用しなくても所期の目的を達成することができる。

本発明の組成物は、成形材料、積層材料（バインダーとして）、封止材料、接着材料、絶縁材料等の用途に広く応用可能である。

(実施例と比較例)

つぎに、本発明の実施例及び比較例をあげるが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

うな量とした。鉄板を同温度に保持した後、冷却したところ、硬化塗膜が得られた。この硬化塗膜について、クラックの発生の有無を調べた。

(3) 引張せん断強さ

予め脱脂したテストピース（軟鋼板  $100 \times 20 \times 3 \text{ mm}$ ）にて接着力（せん断強さ）を測定した。ただし引張速度は  $5 \text{ mm/分}$  の条件とし、高温中測定は規定温度中に  $10 \text{ 分}$  保持してから測定した。また圧着時の加圧力は  $1 \text{ kg}/15 \times 10 \text{ mm}^2$  又は  $1 \text{ kg}/15 \times 10 \text{ mm}^2$  相当ピンチコックとした。

(4) 加熱撓み温度 (HDT)

規定の条件でプレス成形しテストピースを成形し  $200^\circ\text{C}$  で  $1 \text{ 時間}$ 、 $220^\circ\text{C}$  で  $1 \text{ 時間}$  加熱硬化した。得られた硬化物について ASTM D 648 に準じて HDT を測定した。

(5) 加熱重量減少率

① 加熱重量減少率の分数における分子

示差熱分析法により、 $450^\circ\text{C}$  で加熱を開始し  $3 \text{ 分}$  から  $4 \text{ 分}$  の間の  $1 \text{ 分間}$  に生じた残渣か

なお、例中の部はすべて重量部を示す。

実施例 1～14 及び比較例 1～10

マレイミド化合物、マレイミド化合物の初期縮合物、エポキシ樹脂、硬化剤及び充填剤を下記の第 1 表に示すような量割合でニーダーを用いて均一に混合した。

ついで、粉体塗装に適するような粒度分布となるように常法により粉砕した。

この粉砕物について諸物性を調べたところ、下記の第 1 表に示すような結果が得られた。

各物性の測定方法、評価を下記に示す。

(1) ゲル化時間

粉体約  $0.1 \sim 0.2 \text{ g}$  を  $150^\circ\text{C}$  に加熱した金属板の円形凹部に充てんし、該粉体がゲル化するまでの時間（秒）を測定し、これをゲル化時間とした（JIS C 2104 に準じた）。

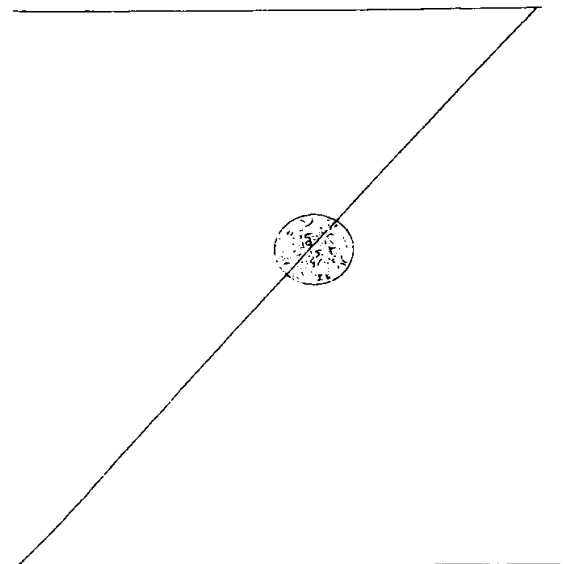
(2) クラック発生の有無

予め  $180 \sim 200^\circ\text{C}$  に加熱した鉄板（ $20 \text{ mm} \times 150 \text{ mm} \times 3.2 \text{ mm}$ ）に粉体を塗布した。塗布量は、硬化後の膜厚が  $0.3 \sim 0.5 \text{ mm}$  となるよ

うに減少量を計算によって求めた。

② 加熱重量減少率の分数における分母

$350^\circ\text{C}$  で  $1 \text{ 時間}$ 、 $400^\circ\text{C}$  で  $20 \text{ 分間}$  加熱後の重量減少率を計算によって求めた。



特開昭 63-8414 (7)

表 1 変

	例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
ビスマレイミド	60	80	80	70	50	50	50	50	70	20
ビスマレイミド初期重合体										
ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂										
ビスフェノールA型固型エポキシ樹脂*1		20	20	30					30	80
" *2	40				25	25	25	25		
クレゾールノボラック型エポキシ樹脂					25	25	25	25		
ジシアジアミド	4.0	2.5	2.5	3.0	9.1					
C11Z-AZINE	2.0	2.0	2.0	2.0		1.5			1.0	
C11Z-CNS										
2M2-AZINE								0.5		
ジクミルバーオキサイド					1.0		1.0			
イソフタル酸ジヒドラジド						10.0	10.0			
ジアミノジフェニルスルホン								18.0		
ジメチルジアミノメタン									13.0	15.0
ベンジルジフェニルアミン										0.66
BDO-モノエチルアミン誘体										

表 1 変 (続き)

	例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
アルミナ微粉末	100	150	100	100	100	100	100	100	100	150
シリカ微粉末										
けい酸カルシウム微粉末 * 1			100	50					50	
" * 2				50					50	
ガラス粉末										
マイカ										
ポリイミド樹脂硬化物粉末			10							
アクリル酸エステルオリゴマー	0.3	0.3	0.3	0.3	0.2	0.2	0.2	0.2	0.3	0.3
150℃におけるゲル化時間(秒)	210	150	220	170	>300	75	>300	150	360	210
170℃におけるゲル化時間(秒)	110	—	—	—	40~50	—	30~40	50	—	—
200℃におけるゲル化時間(秒)	20	28	32	23	5	13	5~8	10	50~56	20
クラック発生の有無	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
接着力	157/144	156/175	140/125	145/138	225/172	166/136	170/145	185/154	140/113	138/110
加熱浸み温度(℃)	243/247	225/240	220/250	200/280	255/265	195/205	221/240	209/212	277/280	265/290
加熱重量減少率(%)	2.4/18	1.5/14.5	0.9/10.5	1.7/14.4	3.4/23.1	0.8/27.9	1.2/20.5	1.0/21.9	0.7/15.7	1.0/13.5

特開昭 63-8414 (8)

第 1 表 (続き)

	実 験 例				比 較 例				
	11	12	13	14	1	2	3	4	5
ビスマレイミド	20	50			50	50	50	50	50
ビスマレイミド初期重合体			50	50					
ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂									
ビスフェノールA型固型エポキシ樹脂*1	80								
" *2		25	25	25	25	25	25	25	25
クレゾールノボラック型エポキシ樹脂		25	25	25	25	25	25	25	25
ジシアンジアミド			4.0	9.1	9.1				
C <sub>11</sub> Z-AZINE			2.0						
C <sub>11</sub> Z-CNS									
2M2-AZINE									
ジクミルパーオキサイド				1.0		1.25			
イソフタル酸ジヒドラジド							10.0		
ジアミノジフェニルスルホン		18.0						18.0	
ジメチルジフェニルメタン	15.0								
ベンジルジアミン	0.66								1.0
BF <sub>3</sub> -モノエチルアミン錯体		1.0							

第 1 表 (続き)

	実 験 例				比 較 例				
	11	12	13	14	1	2	3	4	5
アルミナ微粉末	100	100	100	100	100	100	100	100	100
シリカ微粉末									
けい酸カルシウム微粉末*1	100								
" *2									
ガラス粉末									
マイカ									
ポリイミド樹脂硬化物粉末									
アクリル酸エステルオリゴマー	0.3	0.2	0.3	0.3	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
150℃におけるゲル化時間(秒)	200	240			>600	>600	>600	>600	>600
170℃におけるゲル化時間(秒)		68			—	—	—	—	—
200℃におけるゲル化時間(秒)	22	18			243	<10	360	480	280-310
クラック発生の有無	なし	ややあり			あり	あり	かなりあり	あり	あり
機 着 性	144/108	180/160	1	1	110/85	108/75	106/92	120/105	126/101
加熱溶み温度(℃)	183/254	215/245	1	1	130/160	181/190	110/208	140/230	105/110
加熱重量減少率(%)	0.6/13.1	0.9/1.5	1	1	11.3/15.8	18.5/14.5	11.2/26.9	7.8/19.5	13.5/26.4



第 1 表 (続き)

	比 較 例				
	6	7	8	9	10
ビスマレイミド	50	50	50		
ビスマレイミド初期重合体				100	100
ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂					5.0
ビスフェノールA型固型エポキシ樹脂*1					
" *2	25	50	25	80	
クレゾールノボラック型エポキシ樹脂	25		25	20	
ジシアンジアミド		7.5			
C <sub>11</sub> Z-AZINE			1.2	1.2	
C <sub>11</sub> Z-CNS					
2MZ-AZINE					2.0
ジクミルパーオキサイド		1.25			
イソフタル酸ジヒドラジド					
ジアミノジフェニルスルホン					
ジメチルジフェニルメタン					19.5
ベンジルジメチルアミン					
BF <sub>3</sub> -モノエチルアミン錯体	1.5				

第 1 表 (続き)

	比 較 例				
	6	7	8	9	10
アルミナ微粉末	100		100	50	
シリカ微粉末					200
けい酸カルシウム微粉末*1					
" *2					
ガラス粉末				30	
マイカ				20	
ポリイミド樹脂硬化物粉末					
アクリル酸エステルオリゴマー	0.2	0.2	0.2	0.2	0.3
150℃におけるゲル化時間(秒)	>600	240-300	236	190	788
170℃におけるゲル化時間(秒)	—	10	110	95	—
200℃におけるゲル化時間(秒)	410-460	<10	22	21	150
クラック発生の有無	あり	なし	なし	なし	なし
接着力	130/115	177/107	136/108	193/87	95/89
加熱撹拌温度(℃)	110/208	220/242	186/180	198/245	201/244
加熱重量減少率(%)	10.5/21.0	3.6/30.5	3.2/21.2	1.8/25.1	6.0/0.7

特開昭63-8414 (10)

ビスマレイミド初期重合体：三菱油化社製、

商品名 MB-190M

ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂：油化シエ

ルエポキシ社製、

商品名 エピコート828

ビスフェノールA型固型エポキシ樹脂\*1：油化

シエルエポキシ社製、

商品名 エピコート1001

ビスフェノールA型固型エポキシ樹脂\*2：油化

シエルエポキシ社製、

商品名 エピコート1002

クレゾールノボラック型エポキシ樹脂：旭化成社

製、商品名 ECN-280

C<sub>11</sub>Z-AZINE：2, 4-ジアミノ-6-(2-ウンデシルイミダゾリル  
-11)-エチル-5-トリア

ジン 四国化成社製商品名

C<sub>11</sub>Z-CNS：1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾリウムトリメリテ  
ート、四国化成社製商品名

2MZ-AZINE：2, 4-ジアミノ-6-

(2-メチルイミダゾリル(11))

-エチル-5-トリアジン、

四国化成社製商品名

アルミナ微粉末：太平洋ランダム社製、商品名

LA-1200

シリカ微粉末：龍森社製、商品名 A-1

けい酸カルシウム微粉末\*1：龍森社製、商品名

SW-400

けい酸カルシウム微粉末\*2：丸和バイオケミカ

ル社製、商品名 ASB-4

ガラス粉末：日本フェロー社製、商品名

XD-9A-M

マイカ：白石カルシウム社製、商品名 C-1000

アクリル酸エステルオリゴマー：日本カーバイド

工業社製、商品名 XK-21

特許出願人

ソマル株式会社

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 63-008414

(43)Date of publication of application : 14.01.1988

(51)Int.Cl.

C08G 59/40  
C08G 73/12

(21)Application number : 61-151997

(71)Applicant : SOMAR CORP

(22)Date of filing : 28.06.1986

(72)Inventor : KITAGAWA KATSUJI  
AKUTAGAWA ICHIRO  
MATSUO TOSHIO

(54) THERMOSETTING POWDER COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide the titled composition outstanding especially in heat resistance suitable for molding compounds, binders for laminating material production, etc., comprising a maleimide compound or its initial condensate, epoxy resin, specific curing agent of mixed system and filler in specified proportion.

CONSTITUTION: The objective composition comprising (A) 10W90pts.wt. of a maleimide compound having in one molecule at least one imide group or its initial condensate, (B) 90W10pts.wt. of an epoxy resin (pref. a bisphenol A type epoxy resin with an epoxy equivalent 450W800 and melting point 65W90°C), (C) effective quantity (quantities) of a curing agent made up of dicyandiamide- imidazole mixed system, dicyandiamide-organic peroxide mixed system, acid hydrazide-imidazole mixed system, acid hydrazide-organic peroxide mixed system, aromatic diamine-imidazole mixed system and/or aromatic diamine-Lewis acid mixed system, and (D) 30W250pts.wt. of filler.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office